

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT/EP 99/08040
4

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

EP99 / 8040



REC'D 16 MAY 2000
WIPO
PCT

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Bescheinigung

09 / 856342

22278 U.S.PTO
09856342



Die STEAG Aktiengesellschaft in Essen/Deutschland hat eine Patentanmeldung
unter der Bezeichnung

"Verfahren zum Betreiben einer Verbrennungseinrichtung"

am 18. November 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Das angeheftete Stück ist eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlage dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig das Symbol F 23 C 6/04 der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 12. November 1999
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag

Weihmayer

Aktenzeichen: 198 53 162.1

Verfahren zum Betreiben einer Verbrennungseinrichtung

5 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Betreiben einer Verbrennungseinrichtung unter Verminderung von Stickstoffoxiden.

Unter dem Gesichtspunkt des Umweltschutzes spielt die Verminderung der Schadstoffemissionen bei der Verbrennung 10 fossiler Brennstoffe eine maßgebliche Rolle. Kritisch sind insbesondere solche Schadstoffe, die weder ausgefiltert, noch ausgewaschen werden können. Hierzu gehören die Stickstoffoxide, vorwiegend NO und NO₂. Zu unterscheiden ist zwischen thermisch gebildeten Stickstoffoxiden, die sich auf 15 der Basis des Luftstickstoffs bilden, und solchen Stickstoffoxiden, die aus dem Brennstoffstickstoff resultieren. Thermische Stickstoffoxide entstehen im wesentlichen bei Temperaturen oberhalb von 1.400 °C. Ihre Entstehung lässt sich bei bestimmten Prozessen durch 20 entsprechende Temperatursteuerung beherrschen.

Stickstoffoxide auf der Basis des Brennstoffstickstoffs hingegen bilden sich bereits bei niedrigen Verbrennungstemperaturen.

Zur Verminderung der Stickstoffoxid-Emissionen von 25 großtechnischen Anlagen wird vorwiegend das SCR-Verfahren angewendet. SCR steht für Selektive Katalytische Reduktion. Dabei wird das ausgebrannte Rauchgas hinter der Ausbrandzone unter Zugabe eines Reduktionsmittels durch einen katalytischen Reaktor geleitet, in welchem bei Temperaturen 30 von 300-400 °C eine Aufspaltung der Stickstoffoxide unter Bildung von molekularem Stickstoff erfolgt. Der durch den katalytischen Reaktor bedingte Investitionsaufwand ist erheblich. Auch fallen hohe Betriebskosten an, da die Katalysatoren gereinigt und erneuert werden müssen.

- Bekannt ist ferner das SNCR-Verfahren. SNCR steht für Selektive Nicht-Katalytische Reduktion. Hier wird das Reduktionsmittel direkt im Anschluß an die Ausbrandzone in das überstöchiometrische, auf hoher Temperatur befindliche 5 ausgebrannte Rauchgas eingebracht. Es finden dieselben Reaktionen wie im katalytischen Reaktor statt, allerdings mangels Katalysator auf höherem Temperaturniveau und mit geringerem Druckverlust. Dabei muß ein Temperaturfenster eingehalten werden, das etwa zwischen 950 und 1050 °C liegt.
- 10 Oberhalb dieses Temperaturfensters besteht die Gefahr, daß das Reduktionsmittel in Anwesenheit des herrschenden Sauerstoffüberschusses zu Stickstoffoxiden oxidiert. Unterhalb des Temperaturfensters kommt es nur in unzureichendem Ausmaß zu den gewünschten Reaktionen. Es ergibt sich ein Reduktionsmittelschlupf, d. h., das Reduktionsmittel wird als unwirksamer Ballast vom Rauchgas mitgenommen. Im übrigen setzt die Wirksamkeit des SNCR-Verfahrens voraus, daß das Reduktionsmittel sehr intensiv und gleichmäßig beispielsweise über Lanzen und dergleichen 15 unter Einsatz eines Treibmittels mit dem ausgebrannten Rauchgas vermischt wird. Dementsprechend verbietet sich der großtechnische Einsatz dieses Verfahrens. Seine Anwendung beschränkt sich auf kleinere Verbrennungsanlagen, z. B. auf Heizkraftwerke und Müllverbrennungsanlagen. Ein 20 Einsatz eines Treibmittels mit dem ausgebrannten Rauchgas vermischt wird. Dementsprechend verbietet sich der großtechnische Einsatz dieses Verfahrens. Seine Anwendung beschränkt sich auf kleinere Verbrennungsanlagen, z. B. auf Heizkraftwerke und Müllverbrennungsanlagen. Ein 25 großtechnischer Einsatz würde voraussetzen, daß eine Durchmischung über einen Querschnitt von 100-500 m² in gleichmäßiger Weise durchgeführt wird, was ersichtlich ausgeschlossen ist.

Die Schwierigkeiten, das Reduktionsmittel intensiv und 30 gleichmäßig in den Rauchgasstrom einzumischen, haften auch dem in der Entwicklung befindlichen Hochtemperaturverfahren an. Hier wird das Reduktionsmittel in eine Reduktionszone eingegeben, die sich zwischen der Brennerzone und der Ausbrandzone befindet. Brennerzone und Reduktionszone werden 35 unterstöchiometrisch betrieben. Hierzu kann es erforderlich sein, mit Brennstoffstufung zu arbeiten, d. h., einen

Restanteil des Brennstoffs in die Reduktionszone einzugeben.

Zum Einbringen des Reduktionsmittels bedarf es eines Trägermediums. Luft kommt nicht in Frage, da die

Reduktionszone unterstöchiometrisch bleiben muß. Stickstoff

- 5 wiederum ist zu teuer. Es verbleiben also Wasserdampf und verdampfbare Flüssigkeiten, wodurch in beiden Fällen der Wirkungsgrad des Prozesses sinkt. Gleiches gilt für die Einbringung von Ammoniakwasser, dessen zu verdampfender Wasseranteil bei ca. 75% liegt. In der an die Reduktionszone
- 10 anschließenden Ausbrandzone wird die Luftzahl auf über 1 angehoben, und zwar durch Zugabe von zusätzlicher Verbrennungsluft.

Aufgrund des Sauerstoffmangels in der Reduktionszone ist der Anteil des entstehenden NO vergleichsweise gering. Unter

- 15 Zugabe des Reduktionsmittels erfolgt eine Aufspaltung des NO unter Bildung von molekularem Stickstoff.

Zu den Schwierigkeiten, das Reduktionsmittel gleichmäßig und intensiv in die Reduktionszone einzumischen, treten Regelungsprobleme hinzu. Bei Laständerung verkürzt sich

- 20 naturgemäß die Brennerzone. Die Reduktionszone muß also näher an die Brenner herangerückt werden. Bei Erhöhung der Last gilt es zu verhindern, daß die Reduktionszone in die Ausbrandzone hineinwandert und dort mit zusätzlicher Verbrennungsluft beaufschlagt wird, wodurch sich
- 25 überstöchiometrische Verhältnisse einstellen würden.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der eingangs genannten Art zu schaffen, das sich bei geringem Investitions- und Betriebsaufwand in wirksamer und zuverlässiger Weise für den großtechnischen Einsatz eignet.

- 30 Zur Lösung dieser Aufgabe ist das eingangs genannte Verfahren erfindungsgemäß dadurch gekennzeichnet, daß eine unterstöchiometrische Flammenzone erzeugt wird und daß das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht wird.

- 35 Die unterstöchiometrische Flammenzone besitzt einen vergleichsweise geringen Querschnitt, so daß es keinerlei

Schwierigkeiten bereitet, das Reduktionsmittel gleichmäßig über diesem Querschnitt zu verteilen. Auch spielen hierbei Laständerungen keine Rolle.

Ferner ist das Verfahren nach der Erfindung frei von den Temperaturbeschränkungen, denen das SNCR-Verfahren unterliegt. Vielmehr hat es sich als besonders vorteilhaft herausgestellt, in der unterstöchiometrischen Flammenzone eine Temperatur von über 1.100 °C einzustellen.

Als Reduktionsmittel kommt üblicherweise Ammoniak in Frage, ferner Ammoniakwasser, Harnstoff und ähnliche Stickstoffverbindungen, außerdem auch Kohlenwasserstoffe, vor allen Dingen Erdgas (CH_4). In der unterstöchiometrischen Flammenzone wird praktisch der gesamte zur Verfügung stehende Sauerstoff zur Teilstoxidation des Kohlenstoffs verbraucht. NO entsteht nur in geringem Ausmaß. Die Anwesenheit des Reduktionsmittels führt dazu, daß die Konzentration der Radikale NHi, CHi, HCN zunimmt. Diese Radikale reagieren mit dem entstandenen Stickstoffmonoxid, reduzieren es und lassen dabei molekularen Stickstoff entstehen.

Die Temperatur des Prozesses sollte vorzugsweise so geführt werden, daß beim späteren Ausbrand, d. h. bei späterer Luftzufuhr, die entstandenen Stickstoffmoleküle (sowie auch die N_2 -Moleküle der Verbrennungsluft) nicht wieder thermisch zerfallen und Stickstoffoxide bilden. Die Temperatur darf also 1400 °C nicht übersteigen.

Sofern Reduktionsmittel im Übermaß eingesetzt wird, so hat dies keine negativen Auswirkungen. Ein Reduktionsmittelschlupf kann deshalb nicht auftreten, weil das Reduktionsmittel beim anschließenden Ausbrand unter Zufuhr von Sauerstoff vollständig umgesetzt wird. Die Reststoffe (Flugasche und Gips) können also ohne Einschränkungen verwertet werden.

In wesentlicher Weiterbildung der Erfindung wird vorgeschlagen, daß die unterstöchiometrische Flammenzone als Flammenkern aus Brennstoff und Primärluft erzeugt und mit

- einem Schleier aus Sekundärluft, vorzugsweise mit einem weiteren Schleier aus Tertiärluft umhüllt wird. Im unterstöchiometrischen Flammenkern findet also die Zersetzung und Reduktion des NO statt. Die Schleier aus
- 5 Sekundärluft und vorzugsweise aus Tertiärluft sorgen anschließend für den Ausbrand des Brennstoffs und die Zersetzung von überschüssigem Reduktionsmittel. Das Rauchgas tritt also mit den umgebenden Wänden nicht in
- 10 unterstöchiometrischem Zustand in Berührung. Dadurch wird das Auftreten von Hochtemperaturkorrosion wirksam verhindert, worin ein wesentlicher weiterer Vorteil der Erfindung zu sehen ist.

Das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel kann durch seitliche oder zentrale Lanzen in die unterstöchiometrische

15 Flammenzone eingebracht werden. Vorzugsweise jedoch wird es gemeinsam mit dem Brennstoff in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht. Ferner kann es vorteilhaft sein, das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel gemeinsam mit der Primärluft in die unterstöchiometrische Flammenzone

20 einzubringen. Ggf. wird man den Brennstoff bereits mit der Primärluft oder einem Teil der Primärluft mischen. Das Gemisch besteht unter diesen Umständen aus Brennstoff, Primärluft und Reduktionsmittel.

Ferner besteht die Möglichkeit, mindestens einen Teil

25 der Primärluft als Kernluft in die Flamme einzublasen, wobei dies vorzugsweise gemeinsam mit dem Stickstoffoxid-Reduktionsmittel geschieht.

Die Erfindung entwickelt ihre Vorteile bevorzugt überall dort, wo der Brennstoff einen hohen Anteil an Stickstoff

30 enthält. Dies ist der Fall beispielsweise bei Steinkohle, Teeröl, Schweröl, Rückstandsöl, Prozeßgas und dergleichen. Feste Brennstoffe werden vor der Verbrennung vermahlen. Das Reduktionsmittel kann in fester Form (ebenfalls vermahlen) vorliegen oder auch flüssig oder gasförmig. Das Verfahren

35 eignet sich für sämtliche Leistungsstufen und arbeitet ohne zusätzlichen Druckverlust.

25.11.99

6

Hauptanwendungsgebiet der Erfindung ist die Kraftwerkstechnik. Hier sind die Brenner in mehreren Ebenen übereinander seitlich in der Kesselwand angeordnet, wobei der Querschnitt des Kessels 100-500 m² betragen kann.

- 5 Oberhalb der obersten Brennerebene wird Oberluft eingeblasen. Jeder Brenner stellt ein eigenes, unterstöchiometrisches NO-Reduktionssystem dar und liefert überstöchiometrische Rauchgase in den Kessel. Ersichtlich bereitet es keine Schwierigkeiten, einzelne Brennerebenen
10 zu- oder abzuschalten.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Betreiben einer Verbrennungseinrichtung unter Verminderung von Stickstoffoxiden,
- 5 dadurch gekennzeichnet, daß eine unterstöchiometrische Flammenzone erzeugt wird und daß ein Stickstoffoxid-Reduktionsmittel in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht wird.
- 10 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet daß in der unterstöchiometrischen Flammenzone eine Temperatur von über 1.100 °C eingestellt wird.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die unterstöchiometrische Flammenzone als Flammenkern aus Brennstoff und Primärluft erzeugt und mit einem Schleier aus Sekundärluft, vorzugsweise mit einem weiteren Schleier aus Tertiärluft umhüllt wird.
- 20 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel gemeinsam mit dem Brennstoff in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht wird.
- 25 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel gemeinsam mit der Primärluft in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht wird.
- 30 6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß Kernluft in die Flamme eingeblasen wird und daß das Stickstoffoxid-Reduktionsmittel gemeinsam mit der Kernluft in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht wird.

1925 · 11 · 99

PATENTANWÄLTE ZENZ, HELBER, HOSBACH & PARTNER · HUYSSENALLEE 58-64 · D-45128 ESSEN

S 1279
H-sch

STEAG Aktiengesellschaft
Rüttenscheider Straße 1-3
45128 Essen

5

Verfahren zum Betreiben einer Verbrennungseinrichtung

Zusammenfassung

Zur Verminderung der aus Brennstoffstickstoff resultierenden Stickstoffoxide wird eine unterstöchiometrische Flammenzone erzeugt, und es wird ein Stickstoffoxid-Reduktionsmittel in die unterstöchiometrische Flammenzone eingebracht. Das Reduktionsmittel erhöht unter Sauerstoffabschluß die Konzentration der Radikale, welche das entstehende NO reduzieren und molekularen Stickstoff freisetzen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)